

18

(51)Int.Cl.⁵
C 0 9 K 11/06
H 0 5 B 33/14

識別記号 庁内整理番号
Z 9159-4H

F I

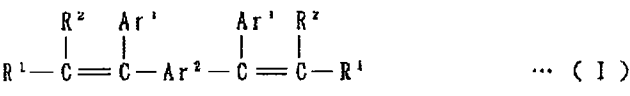
技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全 16 頁)

(21)出願番号	特願平4-250906	(71)出願人	000183646 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内 3 丁目 1 番 1 号
(22)出願日	平成 4 年(1992) 9 月21日	(72)発明者	東 久洋 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株 式会社内
		(72)発明者	東海林 弘 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株 式会社内
		(72)発明者	楠本 正 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株 式会社内
		(74)代理人	弁理士 大谷 保

(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

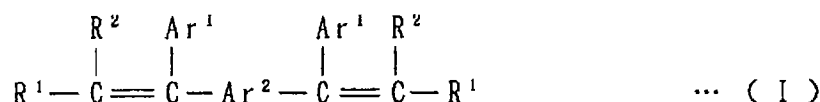
(57)【要約】
【目的】 薄膜性に優れ、高輝度発光を可能とするジオ
レフィン化合物からなる有機 E L 素子の開発。
【構成】 一般式 (I)
【化 1 】



(式中の記号は明細書に記載の通りである。) で表され
るジオレフィン化合物を含有する有機エレクトロルミネ
ッセンス素子。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 一般式 (I)



(式中、 Ar^1 および R^1 はそれぞれ置換あるいは無置換の炭素数 6～20 のアリール基を示し、 Ar^2 は置換あるいは無置換の炭素数 6～20 のアリーレン基を示す。また、 R^2 は水素原子、置換あるいは無置換の炭素数 6～20 のアリール基、炭素数 1～6 のアルキル基を示す。ここで、 R^1 および R^2 は同一でも、また互いに異なってもよく、置換している基と結合して置換あるいは無置換の飽和五員環または置換あるいは無置換の飽和六員環を形成してもよい。ここで、置換基としては炭素数 1～6 のアルキル基、炭素数 1～6 のアルコキシ基、炭素数 6～18 のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲンを示す。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。) で表されるジオレフィン化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 2】 請求項 1 記載のジオレフィン化合物を、一対の電極間に挟持してなる有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 3】 発光層が、請求項 1 記載のジオレフィン化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子。

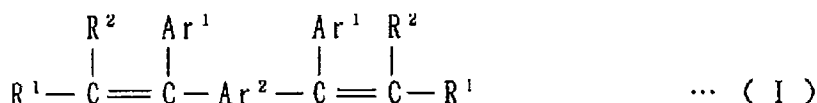
【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子 (有機 EL 素子) に関し、詳しくは、薄膜性に優れ、高輝度発光を可能とするジオレフィン化合物からなる有機 EL 素子に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 電界発光を利用した EL 素子は、自己発光のため視認性が高く、また完全固体素子であるため耐衝撃性に優れるという特徴を有しており、薄型ディスプレイ素子、液晶ディスプレイのバックライト、平面光源などに用いられてい



【0006】 (式中、 Ar^1 および R^1 はそれぞれ置換あるいは無置換の炭素数 6～20 のアリール基を示し、 Ar^2 は置換あるいは無置換の炭素数 6～20 のアリーレン基を示す。また、 R^2 は水素原子、置換あるいは無置換の炭素数 6～20 のアリール基、炭素数 1～6 のアルキル基を示す。ここで、 R^1 および R^2 は同一でも、また互いに異なってもよく、置換している基と結合して置換あるいは無置換の飽和五員環または置換あるいは無置換の飽和六員環を形成してもよい。ここで、置換

【化 1】

る。現在実用化されている EL 素子は、分散型 EL 素子である。この分散型 EL 素子は、数 10 V, 10 kHz 以上の交流電圧を必要とするため駆動回路が複雑になっている。一方、有機薄膜 EL 素子は駆動電圧を 10 V 程度まで低下させることが出来、高輝度に発光するため近年盛んに研究が行われ、多くの有機薄膜 EL 素子が開発されている (C.W.Tang and S.A.VAN Slyke, Appl. Phys. Lett., vol. 51, pp. 913～915 (1987) ; 特開平 6 3-2 6 4 6 2 9 号公報)。これらの有機薄膜 EL 素子は、透明電極/正孔注入層/発光層/背面電極の積層型であり、正孔注入層により効率よく正孔を発光層内へ注入することができる。上記有機薄膜 EL 素子の構成において、発光層にテトラフェニルプタジエン化合物誘導体を用いた有機 EL 薄膜素子 (特開昭 5 9-1 9 4 3 9 3 号公報, 特開平 4-9 6 9 9 0 号公報) がある。しかし、これらは印加電圧が低く高輝度発光をするものであっても、発光材料の結晶化が速く、寿命が短いため素子作製上に問題があった。また、一般にスチリル化合物が発光層に用いられており (欧州特許公開第 0 3 8 8 7 6 8 号公報)、これらは均一なアモルファス性の薄膜が形成され易いことが明らかになっている。

【0003】

【課題を解決するための手段】 そこで、本発明者らは、上記問題点を解決すべく鋭意検討した結果、テトラフェニルプタジエン化合物誘導体とスチリル化合物の両者の特徴を兼ね備えた化合物を分子設計して得られるジオレフィン化合物を有機 EL 素子に用いることにより、より薄膜性に優れた EL 素子を提供できることを見出した。

【0004】 本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。すなわち本発明は、一般式 (I)

【0005】

【化 2】

アルコキシ基、炭素数 6～18 のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲンを示す。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。) で表されるジオレフィン化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである。

【0007】 本発明は、一般式 (I) で表されるジオレフィン化合物を含有する有機 EL 素子である。ここで、一般式 (I) において Ar^1 および R^1 は、例えば、フ

基、アントラリル基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基などで表される炭素数6～20のアリール基である。これらアリール基は、置換または無置換でもよく、単一置換でも複数置換されていてもよい。また、 Ar^2 は、例えば、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、アントラセンジイル基、ピレンジイル基などで表わされる置換あるいは無置換の炭素数6～20のアリーレン基である。これらアリーレン基は、置換または無置換でもよく、単一置換でも複数置換されていてもよい。 R^2 としては水素原子、置換あるいは無置換の炭素数6～20のアリール基（例えば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アントラリル基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基など）、炭素数1～6のアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*i*-プロピル基、*n*-ブチル基、*i*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*i*-ペンチル基、*t*-ペンチル基、ネオペンチル基、*n*-ヘキシル基、*i*-ヘキシル基など）が挙げられる。ここで、置換基としては例えばメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*i*-プロピル基、*n*-ブチル基、*i*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*i*-ペンチル基、*t*-ペンチル基、ネオペンチル基、*n*-ヘキシル基、*i*-ヘキシル基などの炭素数1～6のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、*i*-プロポキシ基、ブチルオキシ基、*i*-ブチルオキシ基、*sec*-ブチルオキシ基、*i*-ペンチルオ

キシ基、*t*-ペンチルオキシ基、*n*-ヘキシルオキシ基などの炭素数1～6のアルコキシ基、フェノキシ基、ナフチルオキシ基など炭素数6～18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲンが挙げられる。また、 R^1 および R^2 は同一でも、また互いに異なってもよく、置換している基と結合して置換あるいは無置換の飽和五員環または置換あるいは無置換の飽和六員環を形成してもよい。

【0008】上記一般式（I）で表されるジオレフィン化合物は、種々の公知の方法によって製造することができる。具体的には、このジオレフィン化合物は以下の文献から容易に製造することができる。

N.P.Buu-Hoi, T.B.Loo, and N.D.Xuong, J.Chem.Soc., 3964 (1957)

Bertoniere, Rowland, and Griffin, J.Org.Chem.Vol 36, No.20, 294 (1971)

Z.Yang, H.J.Geise, Synthetic Metals, 47 (1992) 111-132

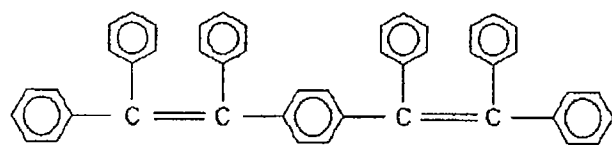
H.-H.Hoerhold, M.Helbig, Materials Science Forum Vols.62-64 (1990), pp.411-417

以下に、本発明で用いられる上記ジオレフィン化合物の具体例（1）～（29）を挙げるが、本発明はそれらに限定されるものではない。

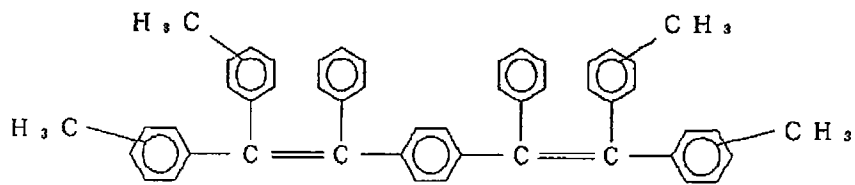
【0009】

【化3】

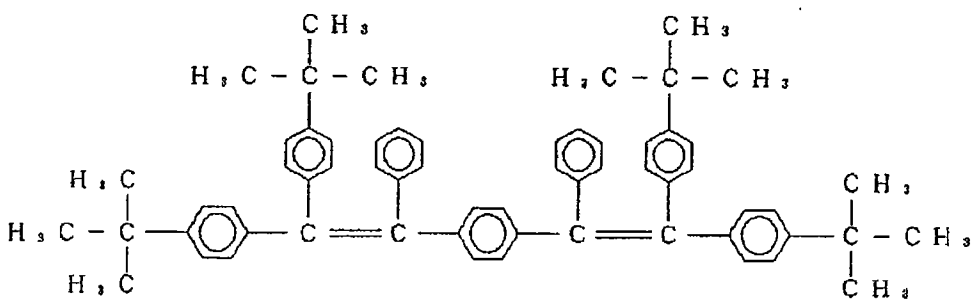
(1)



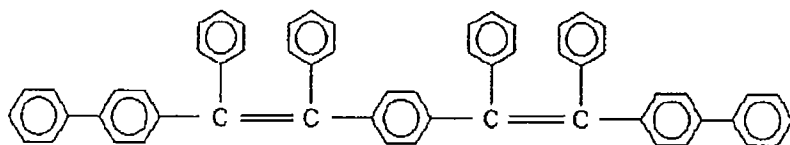
(2)



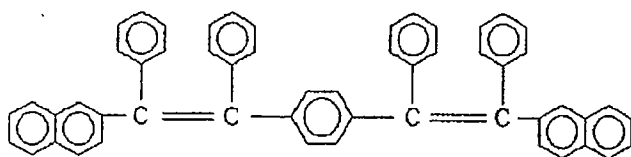
(3)



(4)



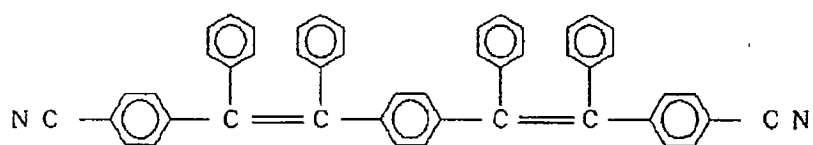
(5)



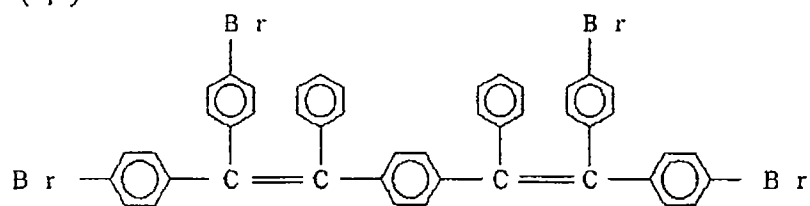
【0010】

【化4】

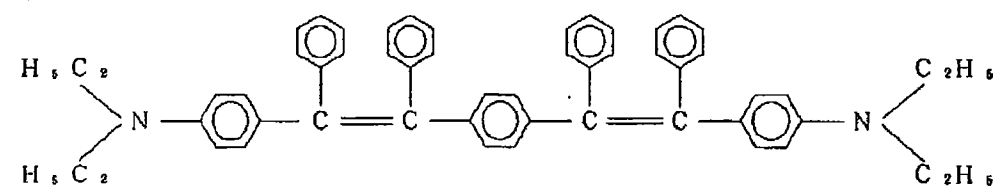
(6)



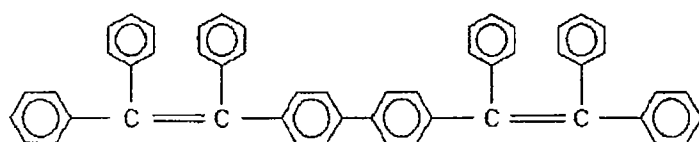
(7)



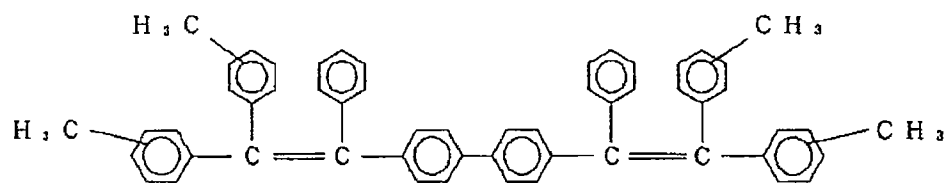
(8)



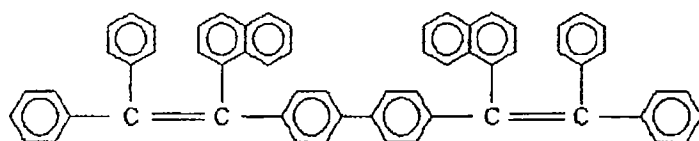
(9)



(1 0)



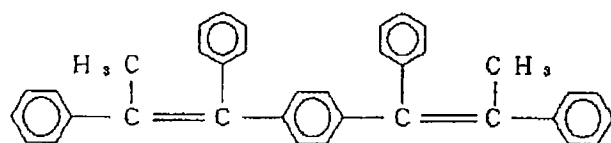
(1 1)



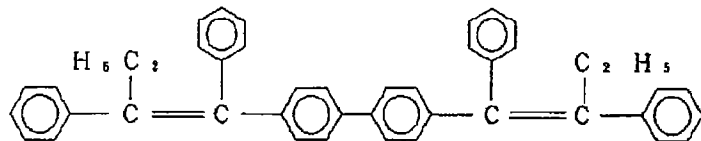
【0011】

【化5】

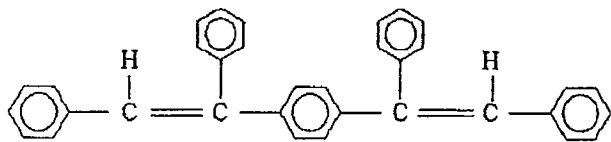
(1 2)



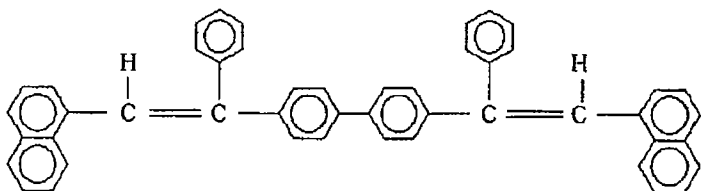
(1 3)



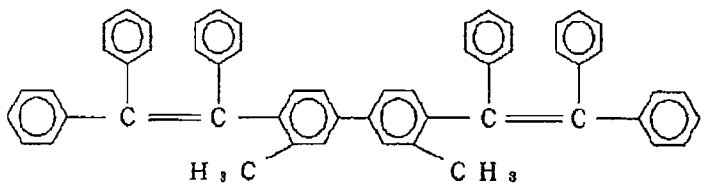
(1 4)



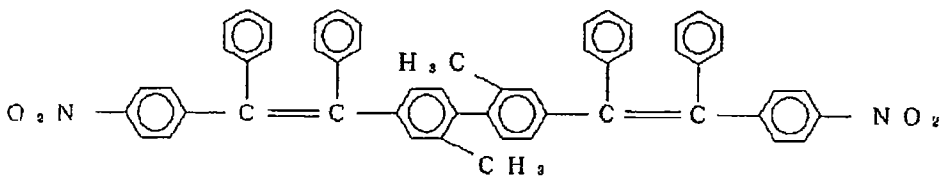
(1 5)



(1 6)



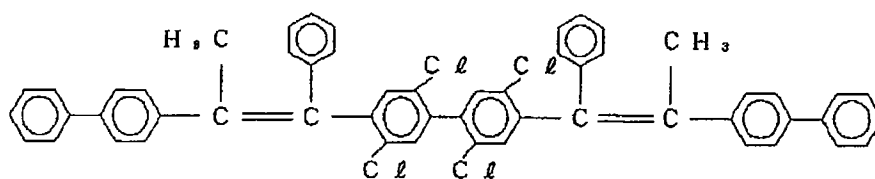
(1 7)



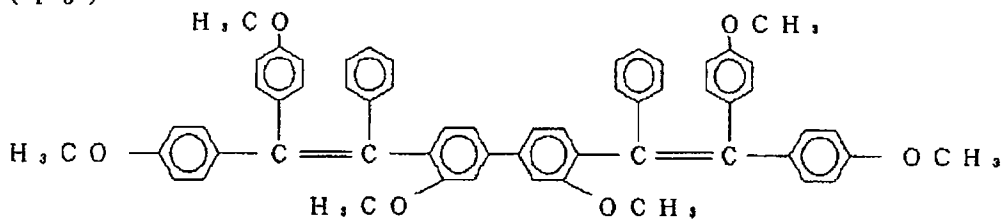
【 0 0 1 2 】

【化6】

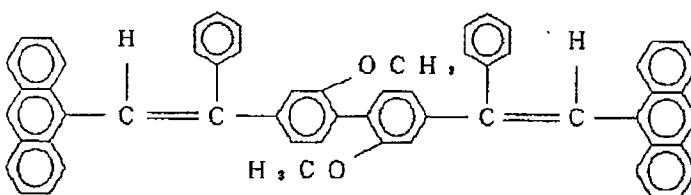
(1 8)



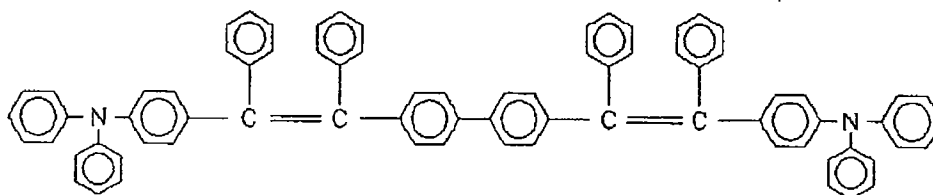
(1 9)



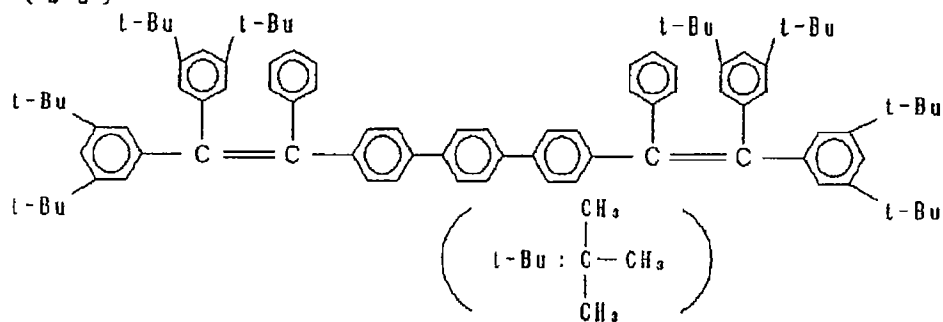
(2 0)



(2 1)



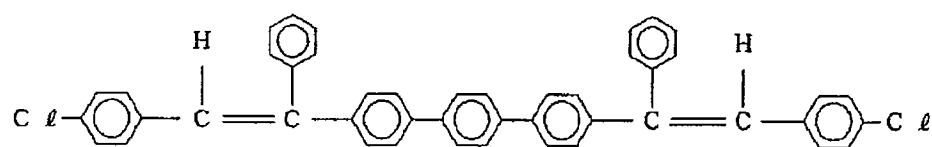
(2 2)



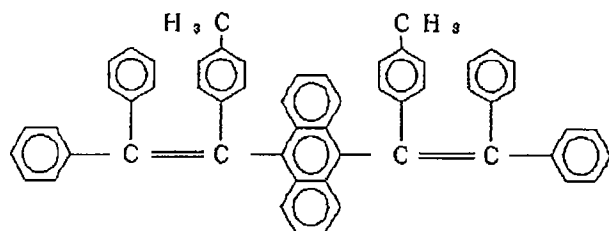
【0013】

【化7】

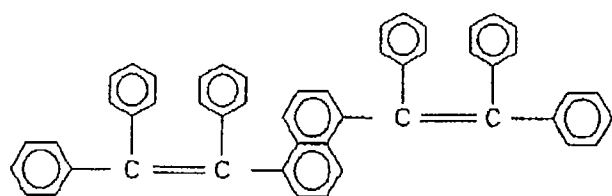
(2 3)



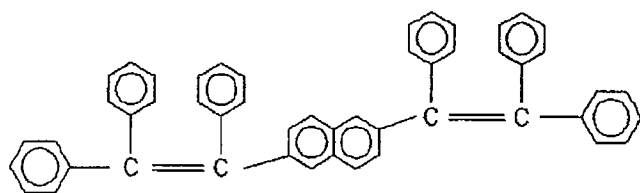
(2 4)



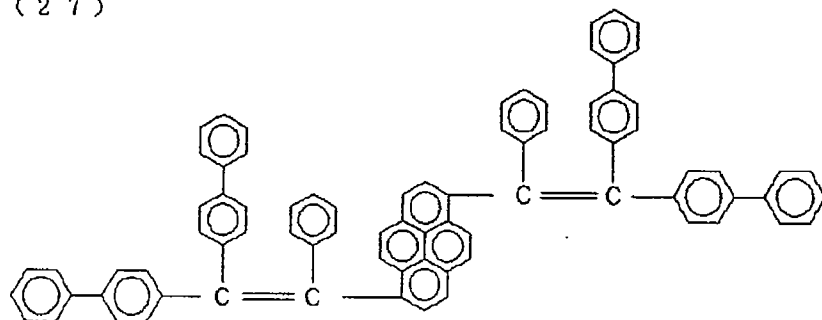
(2 5)



(2 6)



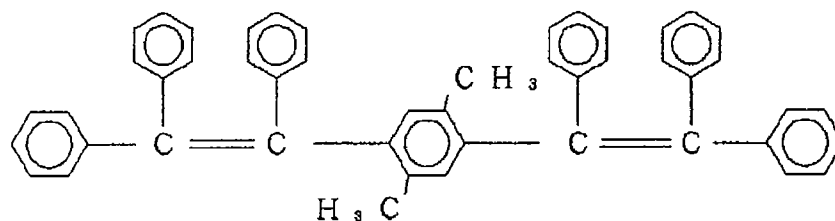
(2 7)



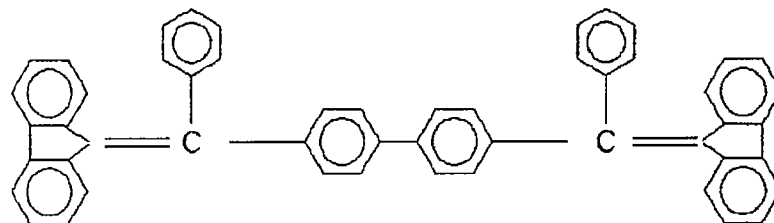
【 0 0 1 4 】

【 化 8 】

(2 8)



(2 9)



【0015】このようにして得られた本発明の前記一般式(I)で表されるジオレフィン化合物は、EL素子における発光材料として有効である。このジオレフィン化合物を発光層とする場合は、例えば蒸着法、スピコート法、キャスト法などの公知の方法によって、一般式

(I)のジオレフィン化合物を薄膜化してことにより形成することができるが、特に分子堆積膜とすることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、該化合物の気相状態から沈着され形成された薄膜や、該化合物の溶液状態又は液相状態から固体化され形成された膜のことであり、例えば蒸着膜などを示すが、通常この分子堆積膜はLB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは区別することができる。また、該発光層は、特開昭59-194393号公報などに開示されているように、樹脂などの結着剤と該化合物とを、溶剤に溶かして溶液としたのち、これをスピコート法などにより薄膜化し、形成することができる。このようにして形成された発光層の膜厚については特に制限はなく、適宜状況に応じて選ぶことができるが、通常5nmないし5 μ mの範囲で選定される。

【0016】このEL素子における発光層は、(1)電界印加時に、陽極又は正孔注入輸送層により正孔を注入することができ、かつ陰極又は電子注入層より電子を注入することができる注入機能、(2)注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる輸送機能、(3)電子と正孔の再結合の場を発光層内部に提供し、これを発光につなげる発光機能などを有している。なお、正孔の注入されやすさと、電子の注入されやすさに違いがあってもよいし、正孔と電子の移動度で表される輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。この発光層に用いる前記一般式(I)で表される化合物は、一般にイオン化エネルギーが6.0eV程度より小さいので、適当な陽極金属又は陽極化合物

は2.8eV程度より大きいので、適当な陰極金属又は陰極化合物を選べば、比較的電子を注入しやすい上、電子、正孔の輸送能力も優れている。さらに固体状態の蛍光性が強いので、該化合物やその会合体又は結晶などの電子と正孔の再結晶時に形成された励起状態を光に変換する能力が大きい。

【0017】本発明の化合物を用いたEL素子の構成は、各種の態様があるが、基本的には、一対の電極(陽極と陰極)間に、前記発光層を挟持した構成とし、これに必要に応じて、正孔注入輸送層や電子注入層を介在させればよい。介在方法としては、ポリマーへの混ぜ込みや同時求着がある。具体的には(1)陽極/発光層/陰極、(2)陽極/正孔注入層(正孔注入輸送層)/発光層/陰極、(3)陽極/正孔注入層(正孔注入輸送層)/発光層/電子注入層/陰極、(4)陽極/発光層/電子注入層/陰極などの構成を挙げることができる。該正孔注入層(正孔注入輸送層)や電子注入層は、必ずしも必要ではないが、これらの層があると発光性能が一段と向上する。また、前記構成の素子においては、いずれも基板に支持されていることが好ましく、該基板については特に制限はなく、従来EL素子に慣用されているもの、例えばガラス、透明プラスチック、石英などから成るものを用いることができる。

【0018】このEL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAuなどの金属、CuI、ITO、SnO₂、ZnOなどの誘電性透明材料が挙げられる。該陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより作製することができる。この電極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大

抗は数百 Ω/\square 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10nmないし1 μm 、好ましくは10～200nmの範囲で選ばれる。

【0019】一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、Al/AlO₂、インジウムなどが挙げられる。該陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、電極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましく、膜厚は通常10nmないし1 μm 、好ましくは50～200nmの範囲で選ばれる。なお、このEL素子においては、該陽極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であることが、発光を透過するため、発光の取出し効率がよく好都合である。

【0020】本発明の化合物を用いるEL素子の構成は、前記したように、各種の態様があり、前記(2)又は(3)の構成のEL素子における正孔注入層(正孔注入輸送層)は、正孔伝達化合物からなる層であって、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有し、この正孔注入輸送層を陽極と発光層との間に介在させることにより、より低い電界で多くの正孔が発光層に注入される。その上、発光層に陰極又は電子注入層より注入された電子は、発光層と正孔注入輸送層の界面に存在する電子の障壁により、この発光層内の界面付近に蓄積されEL素子の発光効率を向上させ、発光性能の優れたEL素子とする。

【0021】前記正孔注入輸送層に用いられる正孔伝達化合物は、電界を与えられた2個の電極間に配置されて陽極から正孔が注入された場合、該正孔を適切に発光層へ伝達する化合物であって、例えば10⁴～10⁶V/cmの電界印加時に、少なくとも10⁻⁶cm²/(V・秒)の正孔移動度をもつものが好適である。このような正孔伝達化合物については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導電材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものやEL素子の正孔注入輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

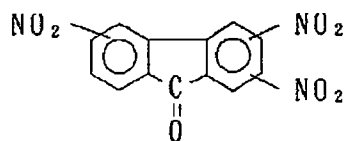
【0022】該電荷輸送材としては、例えばトリアゾール誘導体(米国特許第3,112,197号明細書などに記載のもの)、オキサジアゾール誘導体(米国特許第3,189,447号明細書などに記載のもの)、イミダゾール誘導体(特公昭37-16096号公報などに記載のもの)、ポリアリーラルカン誘導体(米国特許第3,615,402号明細書、同3,820,989号明細書、同3,542,544号明細書、特公昭45-555号公報、同5

報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報などに記載のもの)、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体(米国特許第3,180,729号明細書、同4,278,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報などに記載のもの)、フェニレンジアミン誘導体(米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報などに記載のもの)、アリーラルアミン誘導体(米国特許第3,567,450号明細書、同3,180,703号明細書、同3,240,597号明細書、同3,658,520号明細書、同4,232,103号明細書、同4,175,961号明細書、同4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書などに記載のもの)、アミノ置換カルコン誘導体(米国特許第3,526,501号明細書などに記載のもの)、オキサゾール誘導体(米国特許第3,257,203号明細書などに記載のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報などに記載のもの)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報などに記載のもの)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報などに記載されているもの)、スチルベル誘導体(特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報などに記載のもの)などを挙げることができる。

【0023】これらの化合物を正孔伝達化合物として使用することができるが、次に示すポルフィリン化合物(特開昭63-295695号公報などに記載のもの)及び芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物(米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54

55-79450号公報, 同55-144250号公報, 同56-119132号公報, 同61-295558号公報, 同61-98353号公報, 同63-295695号公報などに記載のもの)、特に該芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

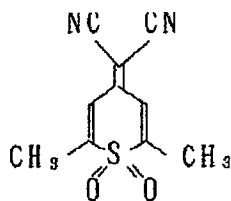
【0024】該ポルフィリン化合物の代表例としては、ポルフィリン；5, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフィリン銅(II)；5, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフィリン亜鉛(II)；5, 10, 15, 20-テトラキス(ペンタフルオロフェニル)-21H, 23H-ポルフィリン；シリコンフタロシアニンオキシド；アルミニウムフタロシアニンクロリド；フタロシアニン(無金属)；ジリチウムフタロシアニン；銅テトラメチルフタロシアニン；銅フタロシアニン；クロムフタロシアニン；亜鉛フタロシアニン；鉛フタロシアニン；チタニウムフタロシアニンオキシド；マグネシウムフタロシアニン；銅オクタメチルフタロシアニンなどが挙げられる。また該芳香族第三級化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-(1, 1'-ビフェニル)-4, 4'-ジアミン；N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン；2, 2-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)プロパン；1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン；N, N, N', N'-テトラ-p-トリル-(1, 1'-ビフェニル)-4, 4'-ジアミン；1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルア



【0027】などのニトロ置換フルオレノン誘導体、

【0028】

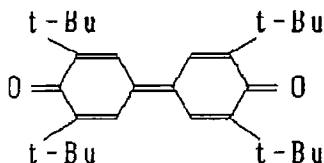
【化10】



【0029】などのチオピランジオキシド誘導体、

【0030】

【化11】

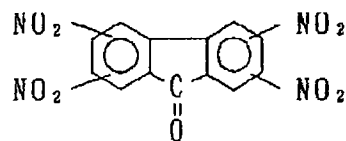


ミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン；ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン；ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン；N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(4-メトキシフェニル)-(1, 1'-ビフェニル)-4, 4'-ジアミン；N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル；4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル；N, N, N-トリ(p-トリル)アミン；4-(ジ-p-トリルアミン)-4'-[4-(ジ-p-トリルアミン)スチリル]スチルベン；4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン；3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベン；N-フェニルカルバゾールなどが挙げられる。

【0025】上記EL素子における該正孔注入輸送層は、これらの正孔伝達化合物一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよいし、あるいは、前記層とは別種の化合物からなる正孔注入輸送層を積層したものであってもよい。一方、前記(3)の構成のEL素子における電子注入層(電子注入輸送層)は、電子伝達化合物からなるものであって、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有している。このような電子伝達化合物について特に制限はなく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。該電子伝達化合物の好ましい例としては、

【0026】

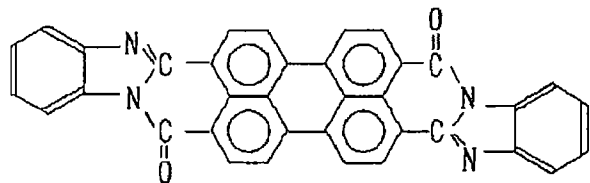
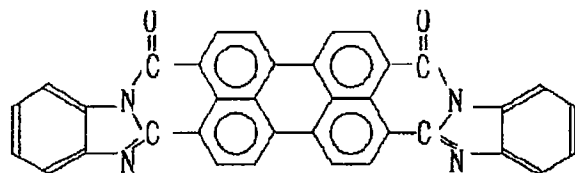
【化9】



「一・プレプリント(Polymer Preprints), ジャパン」第37巻, 第3号, 第681ページ(1988年)などに記載のもの)、あるいは

【0032】

【化12】

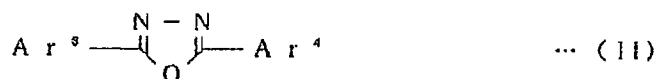


ライド・フィジックス (J. Apply. Phys.)」第27巻,
第269頁(1988年)などに記載のもの)や、アント
トラキノジメタン誘導体(特開昭57-149259号
公報, 同58-55450号公報, 同61-22515
1号公報, 同61-233750号公報, 同63-10
4061号公報などに記載のもの)、フレオレニリデン
メタン誘導体(特開昭60-69657号公報, 同61

-143764号公報, 同61-148159号公報な
どに記載のもの)、アントロン誘導体(特開昭61-2
25151号公報, 同61-233750号公報などに
記載のもの)また、次の一般式 (II) 又は (III)

【0034】

【化13】



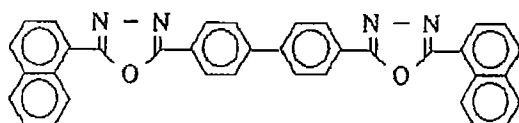
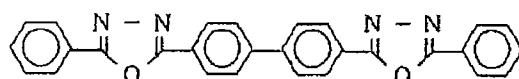
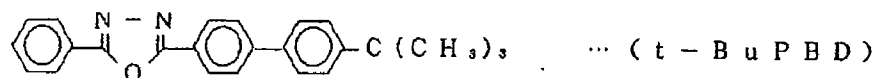
… (III)

【0035】(式中、 $\text{Ar}^3 \sim \text{Ar}^5$ 及び Ar^7 はそれ
ぞれ独立に置換又は無置換のアリール基を示し、 Ar^6
は置換又は無置換のアリーレン基を示す。)で表される
電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基とし
てはフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラ
ニル基、ペリレニル基、ピレニル基等が挙げられ、アリ
ーレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェ
ニレン基、アントラセニレン基、ペリレニレン基、ピレ

ニレン基等が挙げられる。また、置換基としては炭素数
1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基
又はシアノ基等が挙げられる。この一般式 (II) 又は
(III)で表される化合物は、薄膜形成性のものが好まし
い。一般式 (II) 又は (III)で表される化合物の具体例
としては、

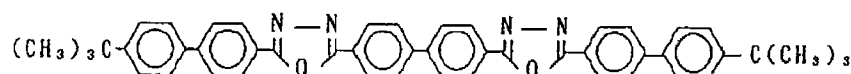
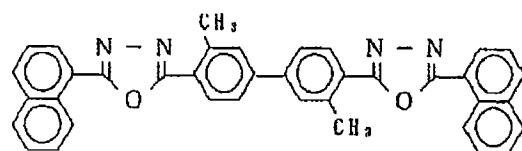
【0036】

【化14】



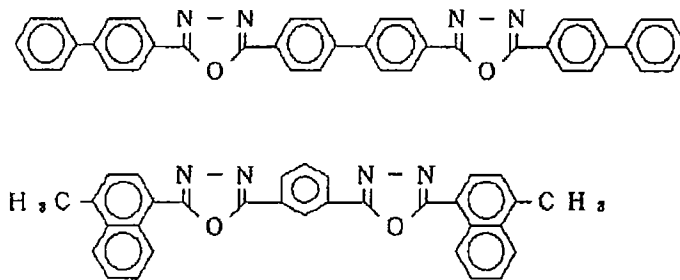
【0037】

【化15】



【0038】

【化16】



【0039】等が挙げられる。

【0040】「Appl.Phys.Lett.」第55巻、第1489ページ（1989年）に開示されているオキサジアゾール誘導体などを挙げることができる。なお、正孔注入輸送層及び電子注入層は電化の注入性、輸送性、障壁性のいずれかを有する層であり、上記した有機材料の他にSi系、SiC系、CdS系などの結晶性ないし非結晶性材料などの無機材料を用いることもできる。有機材料を用いた正孔注入輸送層及び電子注入層は発光層と同様に形成することができ、無機材料を用いた正孔注入輸送層及び電子注入層は真空蒸着法やスパッタリングなどにより形成できるが、有機及び無機のいずれの材料を用いた場合でも発光層のときと同様の理由から真空蒸着法により形成することが好ましい。

【0041】次に、本発明の化合物を用いたEL素子を作製する好適な方法の例を、各構成の素子それぞれについて説明する。前記の陽極／発光層／陰極からなるEL素子の作製法について説明すると、まず適当な基板上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、 $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $10\sim 200\text{nm}$ の範囲の膜厚になるように、蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陽極を作製したのち、この上に発光材料である一般式（I）で表されるジオレフィン化合物の薄膜を形成させ、発光層を設ける。該発光材料の薄膜化の方法としては、例えばスピコート法、キャスト法、蒸着法などがあるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくいなどの点から、蒸着法が好ましい。該発光材料の薄膜化に、この蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する発光層に用いる有機化合物の種類、分子堆積膜の目的とする結晶構造、会合構造などにより異なるが、一般にボート加熱温度 $50\sim 400^\circ\text{C}$ 、真空度 $10^{-5}\sim 10^{-3}\text{Pa}$ 、蒸着速度 $0.01\sim 50\text{nm/sec}$ 、基板温度 $-50\sim +300^\circ\text{C}$ 、膜厚 5nm ないし $5\mu\text{m}$ の範囲で適宜選ぶことが望ましい。次にこの発光層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、 $1\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $50\sim 200\text{nm}$ の範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望のEL素子が得られる。なお、このEL素子の作製においては、作製順序を逆にして、陰極、発光層、陽極の順に作製することも可能である。

発光材料、電子注入材料を混合させた形で電極間に挟持させ発光層とした、陽極／発光層／陰極からなる素子の場合の作製方法としては、例えば適当な基板の上に、陽極用物質からなる薄膜を形成し、正孔注入輸送材料、発光材料、電子注入材料、ポリビニルカルバゾール等の結着剤等からなる溶液を塗布するか、又はこの溶液から浸漬塗工法により薄膜を形成させ発光層とし、その上に陰極用物質からなる薄膜を形成させるものがある。ここで、作製した発光層上に、さらに発光層の材料となる素子材料を真空蒸着し、その上に陰極用物質からなる薄膜を形成させてもよい。あるいは、正孔注入輸送材料、電子注入材料および発光材料を同時蒸着させ発光層とし、その上に陰極用物質からなる薄膜を形成させてもよい。

【0043】次に、陽極／正孔注入輸送層／発光層／陰極から成るEL素子の作製法について説明すると、まず、陽極を前記のEL素子の場合と同様にして形成したのち、その上に、正孔伝達化合物から成る薄膜をスピコート法などにより形成し、正孔注入層を設ける。この際の条件は、前記発光材料の薄膜形成の条件に準じればよい。次に、この正孔注入輸送層の上に、順次発光層及び陰極を、前記EL素子の作製の場合と同様にして設けることにより、所望のEL素子が得られる。なお、このEL素子の作製においても、作製順序を逆にして、陰極、発光層、正孔注入輸送層、陽極の順に作製することも可能である。さらに、陽極／正孔注入輸送層／発光層／電子注入層／陰極から成るEL素子の作製法について説明すると、まず、前記のEL素子の作製の場合と同様にして、陽極、正孔注入輸送層、発光層を順次設けたのち、この発光層の上に、電子伝達化合物から成る薄膜をスピコート法などにより形成して、電子注入層を設け、次いでこの上に、陰極を前記EL素子の作製の場合と同様にして設けることにより、所望のEL素子が得られる。なお、このEL素子の作製においても、作製順序を逆にして、陽極、電子注入層、発光層、正孔注入輸送層、陽極の順に作製してもよい。

【0044】このようにして得られた本発明の有機EL素子に、直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として電圧 $1\sim 30\text{V}$ 程度を印加すると、発光が透明又は半透明の電極側より観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が

印加する交流の波形は任意でよい。

【0045】

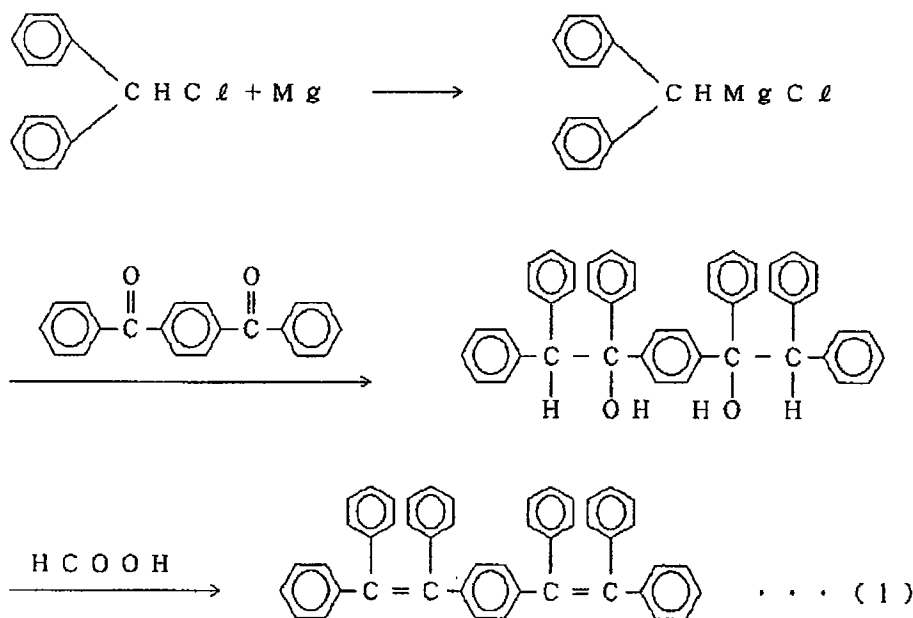
【実施例】次に本発明を、合成例及び実施例によりさらに詳しく説明する。

合成例 1

【0046】

【化17】

合成スキーム



【0047】ジフェニルクロロメタン5.0 g (0.025モル) のテトラヒドロフラン溶液50ミリリットルをアルゴンガス雰囲気下、0℃にてマグネシウム1.0 g (0.041モル) へ1時間かけて滴下した。このとき、反応物は黄色懸濁液となった。このまま2時間攪拌した後、1, 4-ジベンゾイルベンゼン3.0 g (0.01モル) のテトラヒドロフラン溶液50ミリリットルを0℃にて30分かけて滴下した。さらに、4時間攪拌すると反応物は黄緑色懸濁液となった。得られた反応物を氷50 gへ投入し、塩化メチレン50ミリリットルにて抽出し、溶媒を留去すると淡黄色粉末が得られた。この淡黄色粉末と蟻酸12ミリリットルを、130℃にて10分間還流攪拌して放冷後、氷50 gへ投入して塩化メチレン50ミリリットルにて抽出し、シリカゲルカラムで精製した結果、1.0 gの黄色粉末を得た。得られた黄色粉末のIR測定の結果、

$\nu_{C=C} = 1598, 1500 \text{ cm}^{-1}$ であった。

質量分析の結果、

$m/Z = 586 (M^+)$ であった。

さらに元素分析の結果 () は計算値)、 $C_{46}H_{34}$ として

C : 94.23% (94.16%)

H : 5.77% (5.84%)

であった。また、プロトン核磁気共鳴 (^1H-NMR , 基準: テトラメチルシラン (TMS), 溶媒: $CDCl_3$) 測定の結果、

$\delta = 7.0 \sim 7.5 \text{ ppm}$ (m, 34H, 芳香環のH)

であった。以上から、目的のジオレフィン化合物 (1) が合成されていることが確認された。

【0048】合成例2

ジフェニルクロロメタンをベンジルブロマイドに代えた以外は、合成例1と同様にしてジオレフィン化合物 (14) を得た。得られた化合物の物性値を第1表に示す。

【0049】合成例3

ジフェニルクロロメタンを α -ブプロモエチルベンゼンに代えた以外は、合成例1と同様にしてジオレフィン化合物 (12) を得た。得られた化合物の物性値を第1表に示す。

【0050】合成例4

1, 4-ジベンゾイルベンゼンを4, 4'-ジベンゾイルビフェニルに代えた以外は、合成例1と同様にしてジオレフィン化合物 (9) を得た。得られた化合物の物性値を第1表に示す。

【0051】

【表1】

第 1 表

合成例	$^1\text{H-NMR}$ (基準: TMS, 溶媒: CDCl_3)	質量分析 (m/z)	元素分析 (%) (()内は計算値)
2	$\delta = 6.8 \sim 7.5 \text{ ppm, m,}$ 26 H (芳香環の H)	434	$\text{C}_{34}\text{H}_{26}$ C: 94.02 (93.97) H: 5.98 (6.03)
3	$\delta = 6.8 \sim 7.4 \text{ ppm, m,}$ 24 H (芳香環の H) $\delta = 2.6 \text{ ppm, s,}$ 6 H (CH_3 の H)	462	$\text{C}_{36}\text{H}_{30}$ C: 93.33 (93.41) H: 6.67 (6.59)
4	$\delta = 6.8 \sim 7.5 \text{ ppm, m,}$ 38 H (芳香環の H)	662	$\text{C}_{58}\text{H}_{38}$ C: 94.31 (94.22) H: 5.69 (5.78)

【0052】実施例 1

膜厚 100 nm のガラス基板 (25 mm × 75 mm × 1.1 mm, HOYA 製) を透明支持基板とした。この透明支持基板をイソプロピルアルコールで 5 分間超音波洗浄しイソプロピルアルコールに浸漬して洗浄し、さらに UV イオン洗浄器 (サムコインターナショナル社製) にて洗浄した。この透明支持基板を乾燥窒素ガスで乾燥して市販の蒸着装置 (日本真空技術 (株) 製) の基板ホルダーに固定し、モリブテン製の抵抗加熱ボートに N, N' - ビス (3-メチルフェニル) - N, N' - ジフェニル [1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジアミン (TPD) を 200 mg 入れ、また別のモリブテン製ボートに合成例 1 で得られた化合物 (1) で表される 1, 4-ビス (1, 2-ジフェニルビニル) ベンゼンを 200 mg 入れ、さらに別のモリブテン製ボートに前記 2- (4-ビフェニル) - 5- (4-t-ブチルフェニル) - 1, 3, 4-オキサジアゾール (t-BuPBD) を 200 mg 入れ真空蒸着装置に取り付けた。次いで、真空層を 4×10^{-6} Pa まで減圧した後、TPD の入った前記加熱ボートに通電して 250 °C まで加熱し、蒸着速度 0.1 ~ 0.3 nm/秒で透明支持基板上に蒸着して膜厚 50 nm の正孔注入輸送層を設けた。そして、1, 4-ビス (1, 2-ジフェニルビニル) ベンゼンの入った前記加熱ボートに通電して 220 °C まで加熱し、蒸着速度 0.1 ~ 0.3 nm/秒で上記正孔注入輸送層の上に蒸着して

膜厚 60 nm の発光層を設けた。さらに、t-BuPBD の入った前記加熱ボートに通電して 160 °C まで加熱し、蒸着速度 0.1 ~ 0.4 nm/秒で発光層上に蒸着して膜厚 20 nm の電子注入層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。次に、真空槽を開け、該電子注入層上にステンレス鋼製のマスクを設置し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにマグネシウム 3 g を入れ、かつ別の抵抗加熱フィラメントにインジウムを入れ、再び真空槽を 2×10^{-6} Pa まで減圧した後、マグネシウム入りのボートに通電して蒸着速度 4 ~ 7 nm/秒でマグネシウムを蒸着した。同時にインジウムを加熱して、蒸着速度 0.2 ~ 0.3 nm/秒で蒸着し、前記マグネシウムとインジウムの混合物からなる対向電極とし、目的とする EL 素子を作製した。この素子の ITO 電極を陽極とし、マグネシウムとインジウムの混合物からなる対向電極を陰極として、直流 10 V を印加したところ、電流密度が 35 ミリアンペア/cm² の電流が流れ、ピーク波長 488 nm の Blue Green の発光を得た。このときの輝度は 250 cd/m² であった。

【0053】実施例 2 ~ 4

実施例 1 で用いた化合物を合成例 2 ~ 4 で得られた化合物に代えた以外は、実施例 1 と同様に素子を作製した。得られた結果を第 2 表に示す。

【0054】

【表 2】

第2表

実施例	EL素子構成	化合物	膜厚 (nm)	印加電圧 (V)	輝度 (mA/cm ²)	輝度 (cd/m ²)	発光 ピーク波長 (nm)	発光色
2	正孔注入輸送層	TPD	50	10	45	300	486	Greenish Blue
	発光層	化合物(14)	60					
	電子注入層	t-BuPBD	20					
	陰極	Mg:In	130					
3	正孔注入輸送層	TPD	50	10	25	200	480	Blue
	発光層	化合物(12)	60					
	電子注入層	t-BuPBD	20					
	陰極	Mg:In	130					
4	正孔注入輸送層	TPD	50	10	30	450	478	Blue
	発光層	化合物(9)	60					
	電子注入層	t-BuPBD	20					
	陰極	Mg:In	130					

【0055】また、実施例1～4で得られた有機EL素子と比較例として無置換のテトラフェニルブタジエン化合物(1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン)を発光層として用いた有機EL素子との薄膜性の相違を確認するため光学顕微鏡観察を行った。ここで用いた有機EL素子は実施例1と同様にして作製した。その結果、実施例1～4の有機EL素子は結晶化が遅く、1ヶ月間結晶化は観察されなかった。一方、比較例

で発光層として用いたテトラフェニルブタジエン化合物は、素子化後数日で結晶化した。よって、本発明の薄膜性が優れていることが確認された。

【0056】

【発明の効果】以上の如く、本発明のジオレフィン化合物を用いたEL素子は薄膜性に優れ、かつ高輝度発光を可能とした。従って、本発明は、有機EL素子として、様々な工業分野において利用することができる。

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-100857

(43)Date of publication of application : 12.04.1994

(51)Int.Cl. C09K 11/06

H05B 33/14

(21)Application number : 04-250906 (71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO
LTD

(22)Date of filing : 21.09.1992 (72)Inventor : AZUMA HISAHIRO
SHOJI HIROSHI

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the subject element excellent in film thinness and capable of high-luminance emission by incorporating a diolefin compound of a specified formula.

CONSTITUTION: This organic electroluminescent element(EL element) is obtained by using a diolefin compound of formula I [wherein Ar1 and Ar2 are each (substituted)6-20 C aryl; Ar2 is (substituted)6-20 C arylene; R2 is H, (substituted)6-20 C aryl or 1-6 C alkyl; and R1 and R2 may be combined with each other to form a (substituted)saturated five-or six-membered ring, and the substituents include 1-6 C alkyl, 1-6 C alkoxyl, 6-18 C aryloxy, phenyl, NH₂, CN, NO₂ and halogen, provided that each of the above groups may have one or more of these substituents] (e.g. a compound of formula II). This EL element is excellent in film thinness and capable of high-luminance emission, so that it can be used in various industrial fields.

LEGAL STATUS [Date of request for examination] 07.01.1999

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3163589

[Date of registration] 02.03.2001

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

*** NOTICES ***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.*** shows the word which can not be translated.

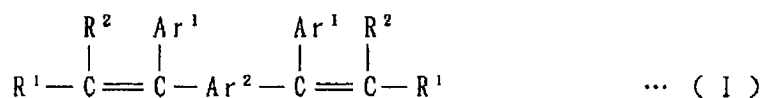
3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] General formula (I)

[Formula 1]



(Ar¹ and R¹ show among a formula the aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or], respectively, and Ar² shows the arylene radical of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or].) Moreover, R² The aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a hydrogen atom a permutation, or] and the alkyl group of carbon numbers 1-6 are shown. Here, it is R¹. And R² Even if the same, you may differ mutually, it may combine with the permuted radical, and the saturation six membered ring which is not permuted [the saturation five membered ring which is not permuted / a permutation or /, a permutation, or] may be formed. Here, as a substituent, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aryloxy group of carbon numbers

6-18, a phenyl group, the amino group, a cyano group, a nitro group, a hydroxyl group, or a halogen is shown. Even if single, two or more permutations of these substituents may be carried out. Organic electroluminescent element containing the diolefin compound expressed.

[Claim 2] The organic electroluminescent element which comes to pinch a diolefin compound according to claim 1 to inter-electrode [of a pair].

[Claim 3] The organic electroluminescent element which a luminous layer becomes from a diolefin compound according to claim 1.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] About an organic electroluminescent element (organic EL device), in detail, this invention is excellent in filminess and relates to the organic EL device which consists of a diolefin compound which enables high brightness luminescence.

[0002]

[Description of the Prior Art] For self-luminescence, the EL element using

electroluminescence has high visibility, and has the description of excelling in shock resistance since it is a perfect solid-state component, and is used for a thin display component, the back light of a liquid crystal display, the flat-surface light source, etc. The EL element by which current utilization is carried out is a distributed EL element. Since this distributed EL element needs several 10V and the alternating voltage of 10kHz or more, the drive circuit is complicated. On the other hand, an organic thin film EL element can reduce driver voltage to about 10V, since light is emitted in high brightness, research is done briskly in recent years, and many organic thin film EL elements are developed (C. W.Tang and S.A.VAN Slyke, Appl.Phys.Lett., vol.51, pp.913-915 (1987); JP,63-264629,A). These organic thin film EL elements are the laminating molds of a transparent electrode / hole injection layer / luminous layer / back plate, and can pour in an electron hole into a luminous layer efficiently with a hole injection layer. In the configuration of the above-mentioned organic thin film EL element, there is an organic electroluminescence thin film (JP,59-194393,A, JP,4-96990,A) which used the tetra-phenyl butadiene compound derivative for the luminous layer. However, even if applied voltage carries out high brightness luminescence low, these had quick crystallization of luminescent material, and since the life was short, the problem was on component production. Moreover, generally the styryl compound is used for the luminous layer (the Europe patent public presentation

No. 0388768 official report), and it is clear that the thin film of amorphous nature with these uniform is easy to be formed.

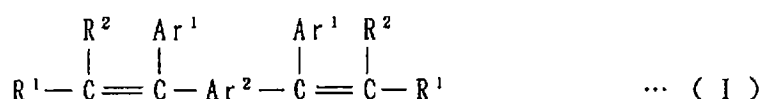
[0003]

[Means for Solving the Problem] Then, this invention persons found out that the EL element which was more excellent in filminess could be offered by using for an organic EL device the diolefin compound obtained by carrying out the molecular design of the compound which has the description of both tetra-phenyl butadiene compound derivative and styryl compound, as a result of inquiring wholeheartedly that the above-mentioned trouble should be solved.

[0004] This invention is completed based on this knowledge. That is, this invention is a general formula (I).

[0005]

[Formula 2]



[0006] (Ar¹ and R¹ show among a formula the aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or], respectively, and Ar² shows the arylene radical of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or].) Moreover, R² The aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a hydrogen atom a permutation, or] and the alkyl

group of carbon numbers 1-6 are shown. Here, it is R1. And R2 Even if the same, you may differ mutually, it may combine with the permuted radical, and the saturation six membered ring which is not permuted [the saturation five membered ring which is not permuted / a permutation or /, a permutation, or] may be formed. Here, as a substituent, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, a phenyl group, the amino group, a cyano group, a nitro group, a hydroxyl group, or a halogen is shown. Even if single, two or more permutations of these substituents may be carried out. The organic electroluminescent element containing the diolefin compound expressed is offered.

[0007] This invention is an organic EL device containing the diolefin compound expressed with a general formula (I). Here, it sets to a general formula (I) and is Ar1. And R1 For example, it is the aryl group of the carbon numbers 6-20 expressed with a phenyl group, a naphthyl group, a biphenyl radical, a terphenyl radical, an ANTORARIRU radical, a phenanthryl group, a pyrenyl radical, a perylene radical, etc. These aryl groups could be permuted [a permutation or] and two or more permutations may be carried out also in the single permutation. Moreover, Ar2 For example, it is the arylene radical of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [the permutation expressed with a phenylene group a naphthylene radical, a biphenylene radical, a terphenylene radical, an

anthracene diyl radical, a pyrene diyl radical, etc., or]. These arylene radical could be permuted [a permutation or] and two or more permutations may be carried out also in the single permutation. R2 If it carries out, the aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a hydrogen atom, a permutation, or] For example, (a phenyl group, a naphthyl group, a biphenyl radical, a terphenyl radical, an ANTORARIRU radical, a phenan tolyl group, a pyrenyl radical, a peri RENIRU radical), etc., The alkyl group of carbon numbers 1-6 (for example) A methyl group, an ethyl group, n-propyl group, i-propyl group, n-butyl, i-butyl, sec-butyl, t-butyl, i-pentyl radical, t-pentyl radical, a neopentyl radical, n-hexyl group, i-hexyl group, etc. are mentioned. Here As a substituent, for example, the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, i-propyl group, n-butyl, i-butyl, sec-butyl, t-butyl, i-pentyl radical, t-pentyl radical, a neopentyl radical, n-hexyl group, and i-hexyl group, The alkoxy group of the carbon numbers 1-6, such as a methoxy group, an ethoxy radical, a propoxy group, i-propoxy group, a butyloxy radical, i-butyloxy radical, a sec-butyloxy radical, an i-pentyloxy radical, a t-pentyloxy radical, and an n-hexyloxy radical, The aryloxy group of carbon numbers 6-18, a phenyl group, the amino group, a cyano group, a nitro group and hydroxyl groups, such as a phenoxy group and a naphthyloxy radical, or a halogen is mentioned. Moreover, R1 And R2 Even if the same, you may differ mutually, it

may combine with the permuted radical, and the saturation six membered ring which is not permuted [the saturation five membered ring which is not permuted / a permutation or /, a permutation, or] may be formed.

[0008] The diolefin compound expressed with the above-mentioned general formula (I) can be manufactured by various well-known approaches. Specifically, this diolefin compound can be easily manufactured from the following reference.

N.P. Buu-Hoi and T.B.Loo -- and N. D.Xuong, J.Chem.Soc., 3964 Bertoniere, Rowland, and and (1957) Griffin and J.Org.Chem.Vol 36, No.20,294(1971) Z.Yang, H.J.Geise, Synthetic Metals, and 47 (1992) 111-132H.-H.Hoerhold, M.Helbig, and Materials Science Although Forum Volts.62-64 (1990), and pp.411 example [of the above-mentioned diolefin compound used or less for -417 by this invention] (1) - (29) is mentioned, this invention is not limited to them.

[0009]

[Formula 3]

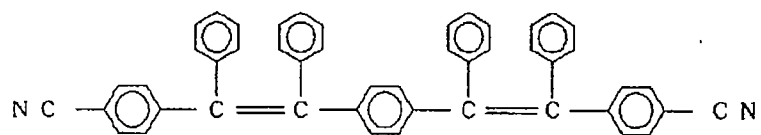
The chemical structure shows a repeating unit of a polyphenyleneacetylene derivative. It consists of a central benzene ring connected to two acetylene groups (C≡C). Each acetylene group is further connected to a phenyl ring. The structure is symmetrical and represents a segment of a polymer chain.

The chemical structure shows a linear polyene chain consisting of three conjugated double bonds. The chain is substituted with phenyl rings and methyl groups. From left to right, the substituents are: a methyl group (H₃C) on the first double bond, a phenyl ring on the second double bond, a phenyl ring on the third double bond, a phenyl ring on the fourth double bond, and a methyl group (CH₃) on the fifth double bond. The double bonds are represented by two parallel lines, and the phenyl rings are represented by hexagons with an inscribed circle.

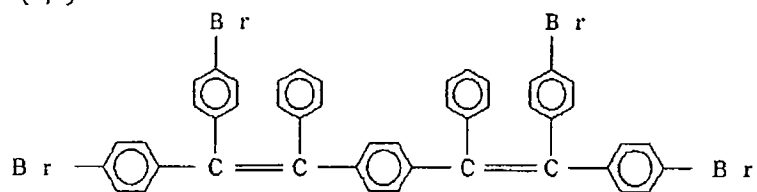
CC(C)(c1ccccc1)C(=C2C(=C(C(=C2)c3ccccc3)C(=C4C(=C(C(=C4)c5ccccc5)C(=C6C(=C(C(=C6)C(C)C)C7C(=C(C(=C7)C(C)C)C8C(=C(C(=C8)C(C)C)C(C)C)C(C)C)C(C)C)C(C)C)C(C)C)C(C)C)C(C)C)C(C)C)C(C)C

[Formula 4]

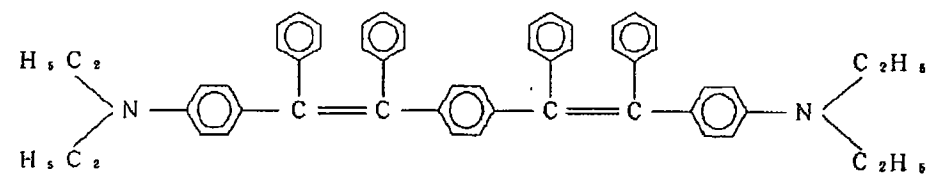
(6)



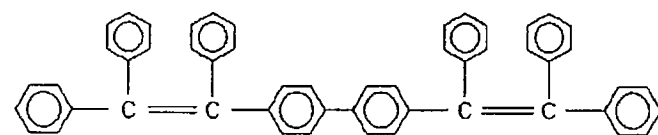
(7)



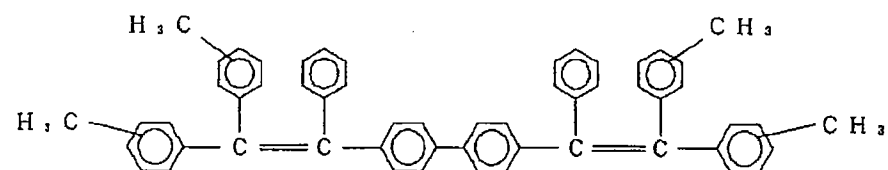
(8)



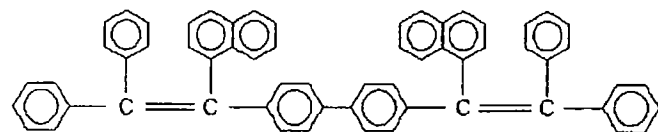
(9)



(1 0)



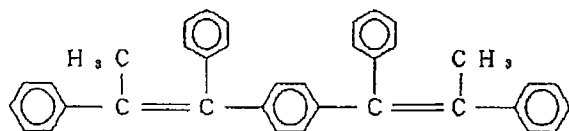
(1 1)



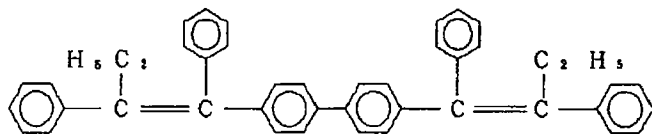
[0011]

[Formula 5]

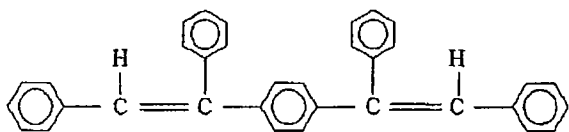
(1 2)



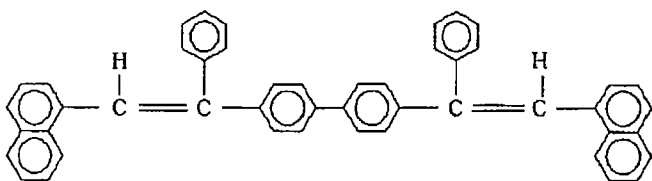
(1 3)



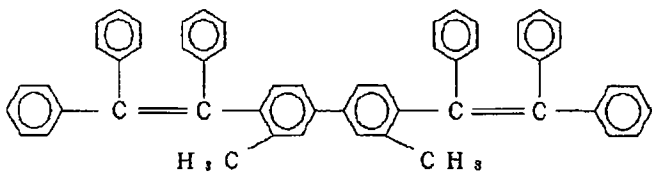
(1 4)



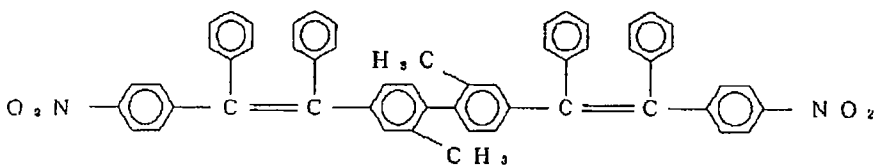
(1 5)



(1 6)



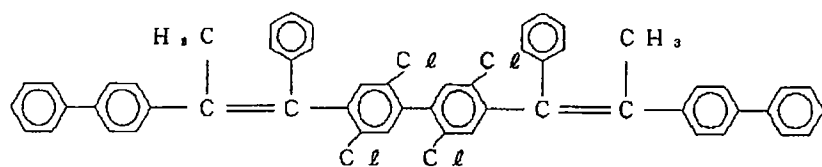
(1 7)



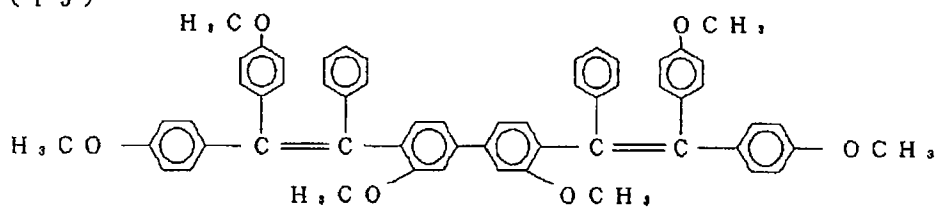
[0012]

[Formula 6]

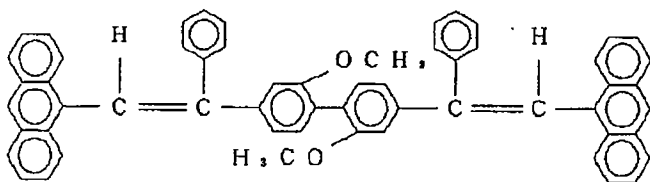
(1 8)



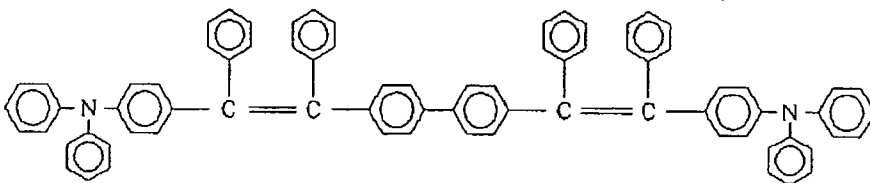
(1 9)



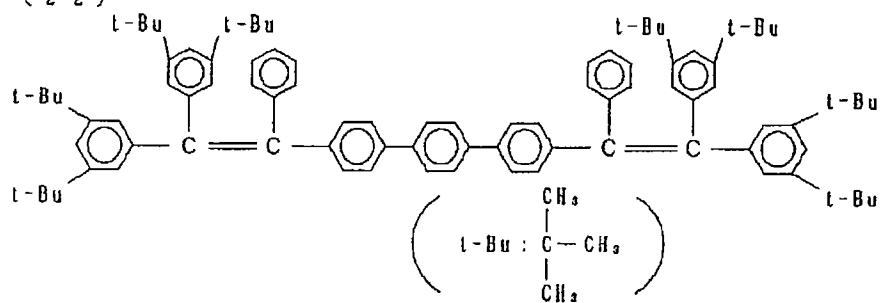
(2 0)



(2 1)



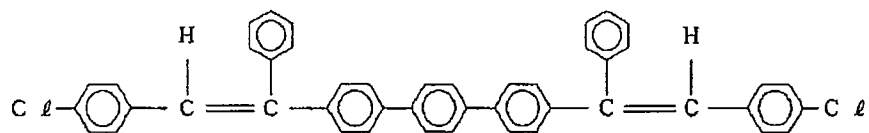
(2 2)



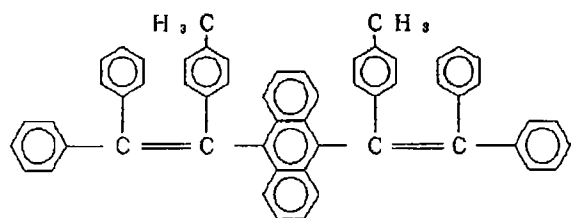
[0013]

[Formula 7]

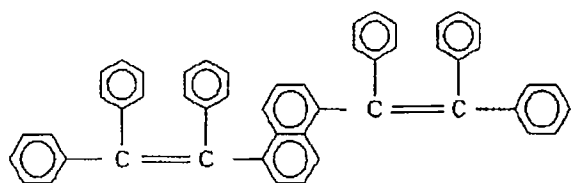
(2 3)



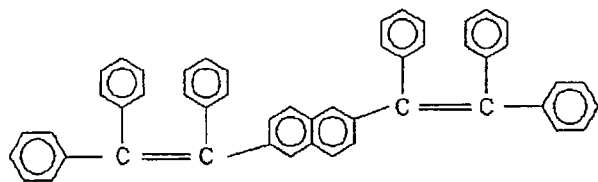
(2 4)



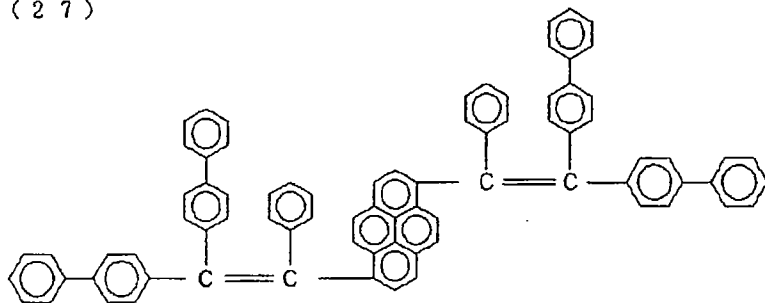
(2 5)



(2 6)



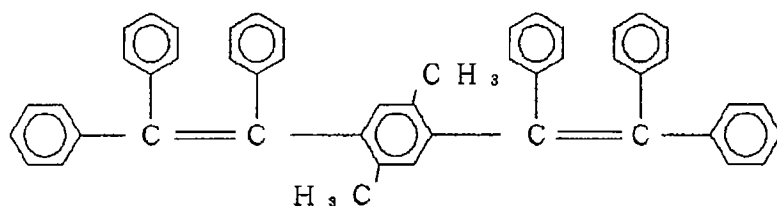
(2 7)



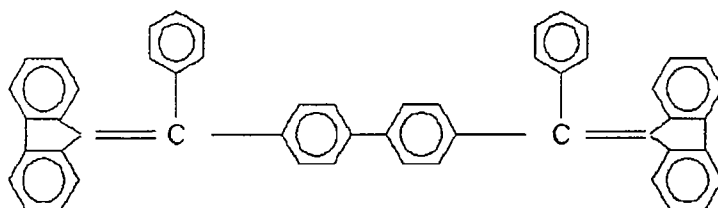
[0014]

[Formula 8]

(2 8)



(2 9)



[0015] Thus, the diolefin compound expressed with said general formula (I) of obtained this invention is effective as a luminescent material in an EL element. Although the diolefin compound of a general formula (I) can be thin-film-ized by well-known approaches, such as vacuum deposition, a spin coat method, and the cast method, when making this diolefin compound into a luminous layer, and it can form by things, considering especially as the molecule deposition film is desirable. although molecule deposition film is the thin film which deposition was carried out and was formed from the gaseous-phase condition of this compound, and film solidified and formed from the solution condition or liquid phase condition of this compound, for example, the vacuum evaporatio film etc. is shown here -- usually -- this molecule deposition film -- LB -- it is distinguishable from the thin film (molecule built up film) formed of law. Moreover, after this

luminous layer melts a binder and these compounds, such as resin, to a solvent and uses them as a solution as indicated by JP,59-194393,A etc., it can thin-film-ize this with a spin coat method etc., and can form it. Thus, although there is especially no limit about the thickness of the formed luminous layer and it can choose according to a situation suitably, it is usually selected in 5nm thru/or 5 micrometers.

[0016] The luminous layer in this EL element provides the interior of a luminous layer with the place of the recombination of the impregnation function to in_which an electron hole can be poured in by the anode plate or the hole-injection transportation layer at the time of (1) electric-field impression, and an electron can be poured into it from cathode or an electronic injection layer, the transportation function, to which the charge (an electron and electron hole) which carried out (2) impregnation is moved by the force of electric field, (3) electrons, and an electron hole, and has the luminescence function of tying this to luminescence etc. In addition, although an electron hole is poured in, an electron may be poured in with easy, a difference may be in easy and size may be in the transportation ability expressed with the mobility of an electron hole and an electron, it is desirable to move one of charges. Since ionization energy is generally smaller than about 6.0eV, the compound expressed with said general formula (I) used for this luminous layer will tend [comparatively] to pour

in an electron hole, if a suitable anode metal or an anode plate compound is chosen. Moreover, when it will comparatively be easy to pour in an electron if a suitable cathode metal or a cathode compound is chosen since an electron affinity is larger than about 2.8eV, the transport capacity of an electron and an electron hole is also excellent. Since the fluorescence of a solid state is still stronger, the capacity to change into light the excitation state formed at the time of recrystallization of electrons, such as this compound, and the meeting object or a crystal, and an electron hole is large.

[0017] Although the configuration of the EL element using the compound of this invention has various kinds of modes, it is considered as the configuration which pinched said luminous layer, and should just make a hole-injection transportation layer and an electronic injection layer this intervene between the electrodes (an anode plate and cathode) of a pair fundamentally if needed. As the mediation approach, there are the mix lump and simultaneous ** arrival to a polymer. Specifically, the configuration of (1) anode plate / luminous layer / cathode, (2) anode plates / hole injection layer (hole-injection transportation layer) / luminous layer / cathode, (3) anode plates / hole injection layer (hole-injection transportation layer) / luminous layer / electronic injection layer / cathode, (4) anode plates / luminous layer / electronic injection layer / cathode, etc., etc. can be mentioned. Although neither this hole injection layer

(hole-injection transportation layer) nor an electronic injection layer is necessarily required, if there are these layers, the luminescence engine performance will improve much more. Moreover, in the component of said configuration, it is desirable that each is supported by the substrate, there is especially no limit about this substrate, and what consists of what is commonly used by the EL element conventionally, for example, glass, a transparent plastic, a quartz, etc. can be used.

[0018] What uses the large (4eV or more) metal, the alloy, the electrical conductivity compounds, and such mixture of a work function as electrode material as an anode plate in this EL element is used preferably. As an example of such electrode material, dielectric transparent materials, such as metals, such as Au, CuI, ITO and SnO₂, and ZnO, are mentioned. This anode plate can produce such electrode material by making a thin film form by approaches, such as vacuum evaporation and sputtering. When taking out luminescence from this electrode, it is desirable to make permeability larger than 10%, and below hundreds of ohms / ** of the sheet resistance as an electrode are desirable. Furthermore, although thickness is based also on an ingredient, it does not usually have 10nm and is preferably chosen in 10-200nm 1 micrometer.

[0019] What, on the other hand, uses the small (4eV or less) metal, the alloy, the electrical conductivity compounds, and such mixture of a work function as

electrode material as cathode is used. As an example of such electrode material, a sodium and sodium-potassium alloy, magnesium, a lithium, magnesium / copper mixture, aluminum/ AlO_2 , an indium, etc. are mentioned. This cathode can produce such electrode material by making a thin film form by approaches, such as vacuum evaporation and sputtering. Moreover, below hundreds of ohms / \square of the sheet resistance as an electrode are desirable, and thickness does not usually have 10nm and is preferably chosen in 50-200nm 1 micrometer. In addition, in this EL element, transparence or a translucent thing has the drawing effectiveness of luminescence well convenient [either], in order for either this anode plate or cathode to penetrate luminescence.

[0020] As the configuration of the EL element using the compound of this invention was described above, there are various kinds of modes and the hole injection layer (hole-injection transportation layer) in the EL element of the above (2) or the configuration of (3) It is the layer which consists of an electron hole transfer compound, and it has the function to transmit the electron hole poured in from the anode plate to a luminous layer, and many electron holes are poured into a luminous layer by lower electric field by making this hole-injection transportation layer intervene between an anode plate and a luminous layer. Moreover, the electron poured into the luminous layer from cathode or an electronic injection layer is accumulated near the interface in this luminous layer

with the obstruction of the electron which exists in the interface of a luminous layer and a hole-injection transportation layer, raises the luminous efficiency of an EL element, and let it be the EL element which was excellent in the luminescence engine performance.

[0021] When it has been arranged inter-electrode [which was able to give electric field / two] and an electron hole is poured in from an anode plate, the electron hole transfer compound used for said hole-injection transportation layer is a compound which may transmit this electron hole to a luminous layer appropriately, for example, what has the hole mobility of $10^{-6} \text{cm}^2/(\text{V} \text{ and second})$ at least at the time of electric-field impression of $10^4 - 10^6 \text{ V/cm}$ is suitable for it. About such an electron hole transfer compound, if it has the aforementioned desirable property, there is especially no limit, and it can choose and use the thing of arbitration in a photoconduction ingredient conventionally out of what is commonly used as charge transportation material of an electron hole, or the well-known thing used for the hole-injection transportation layer of an EL element.

[0022] As this charge transportation material, for example A triazole derivative (thing given in a U.S. Pat. No. 3,112,197 specification etc.), An oxadiazole derivative (thing given in a U.S. Pat. No. 3,189,447 specification etc.), An imidazole derivative (thing given in JP,37-16096,B etc.), the poly aryl alkane

derivative (the [United States patent] -- 3,615,402) a number specification --
this 3,820,989 a number specification -- this 3,542,544 A thing given in a number
specification, JP,45-555,B, a 51-10983 official report, JP,51-93224,A, a
55-17105 official report, a 56-4148 official report, a 55-108667 official report, a
55-156953 official report, a 56-36656 official report, etc., A pyrazoline derivative
And a pyrazolone derivative a U.S. Pat. No. 3,180,729 specification -- said -- a
4,278,746 number specification, JP,55-88064,A, a 55-88065 official report, a
49-105537 official report, a 55-51086 official report, a 56-80051 official report,
and a 56-88141 official report -- A thing given in a 57-45545 official report, a
54-112637 official report, a 55-74546 official report, etc., a phenylenediamine
derivative (the [United States patent] -- 3,615,404) A thing given in a number
specification, JP,51-10105,B, a 46-3712 official report, a 47-25336 official report,
JP,54-53435,A, a 54-110536 official report, a 54-119925 official report, etc., an
arylamine derivative (the [United States patent] -- 3,567,450) a number
specification -- this 3,180,703 a number specification -- this 3,240,597 a number
specification -- this 3,658,520 a number specification -- this 4,232,103 a number
specification -- this 4,175,961 A number specification, this No. 4,012,376
specification, JP,49-35702,B, a 39-27577 official report, JP,55-144250,A, a
56-119132 official report, a 56-22437 official report, and West German patent
1,110,518th A thing given in a number specification etc., An amino permutation

chalcone derivative (thing given in a U.S. Pat. No. 3,526,501 specification etc.),
An oxazole derivative (thing given in a U.S. Pat. No. 3,257,203 specification etc.),
A styryl anthracene derivative (thing given in JP,56-46234,A etc.), full -- me --
non -- a derivative (thing given in JP,54-110837,A etc.) -- a hydrazone derivative
(the [United States patent] -- 3,717,462) What is indicated by a number
specification, JP,54-59143,A, a 55-52063 official report, a 55-52064 official
report, the 55-46760 official report, the 55-85495 official report, the 57-11350
official report, the 57-148749 official report, etc., A still bell derivative
JP,61-210363,A, a 61-228451 official report, a 61-14642 official report, a
61-72255 official report, a 62-47646 official report, a 62-36674 official report, a
62-10652 official report, and a 62-30255 official report -- The thing of a
publication etc. can be mentioned to a 60-93445 official report, a 60-94462
official report, a 60-174749 official report, a 60-175052 official report, etc.

[0023] Although these compounds can be used as an electron hole transfer
compound The porphyrin compound shown below (Thing given in
JP,63-295695,A etc.) And an aromatic series tertiary-amine compound And a
styryl amine compound a U.S. Pat. No. 4,127,412 specification, JP,53-27033,A,
a 54-58445 official report, a 54-149634 official report, a 54-64299 official report,
a 55-79450 official report, a 55-144250 official report, and a 56-119132 official
report -- It is desirable a thing given in a 61-295558 official report, a 61-98353

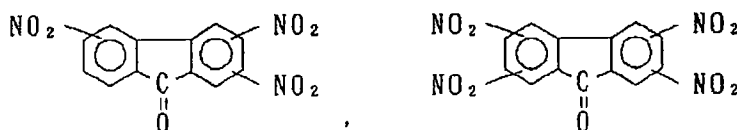
official report, a 63-295695 official report, etc. and to use this aromatic series tertiary-amine compound especially.

[0024] As an example of representation of this porphyrin compound Porphyrin; 5, 10, 15, 20-tetrapod phenyl-21H, 23H-porphyrin copper (II);5, 10 and 15, 20-tetrapod phenyl-21H, 23H-porphyrin zinc (II);5, 10 and 15, 20-tetrakis (Pentafluorophenyl) -21H and 23H-porphyrin; Silicon phthalocyanine oxide; Aluminum phthalocyanine chloride; A phthalocyanine ; (Non-metal) Dilithium phthalocyanine; copper tetramethyl phthalocyanine; -- copper-phthalocyanine; -- chromium phthalocyanine; -- zinc phthalocyanine; -- lead phthalocyanine; -- titanium phthalocyanine oxide; -- magnesium phthalocyanine; -- a copper octamethyl phthalocyanine etc. is mentioned. moreover, as an example of representation of this aromatic series tertiary compound and a styryl amine compound - tetra-phenyl - N, N, N', and N' -- (1 and 1'-biphenyl)-4, 4'-diamine;N, N'-bis(3-methylphenyl)-N, N'-diphenyl-[1 and 1'-biphenyl]-4, 4'-diamine;2, and 2-bis(4-G p-tolylamino phenyl) propane; 1 and 1-screw (4-G p-tolylamino phenyl) cyclohexane; -- N, N, N', and N' - tetra--p-tolyl - (1 and 1'-biphenyl) -4 and 4'-diamine;1 -- a 1-bis(4-G p-tolylamino phenyl)-4-phenylcyclohexane; screw Phenylmethane; (4-dimethylamino-2-methylphenyl) A screw Phenylmethane; (4-G p-tolylamino phenyl) N, N'-diphenyl-N, N'-JI (4-methoxyphenyl) - N-Tori (p-tolyl) amine;4- (1 and 1'-biphenyl)-4 and 4' - diamine; -- N, N, N', and N' -- the -

tetra-phenyl -4, 4'-diamino diphenyl ether; 4, and 4' - bis(diphenylamino) KUODORI phenyl; -- N and N -- (G p-tolyl amine)-4'-[4 Styryl] stilbene; (G p-tolyl amine) A 4-N, N-diphenylamino-(2-diphenyl vinyl) benzene; 3-methoxy-4'-N, and N-diphenylamino stilbene; N-phenyl carbazole etc. is mentioned.

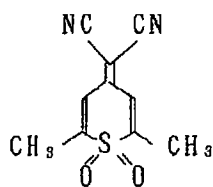
[0025] This hole-injection transportation layer in the above-mentioned EL element may consist of one layer which consists of these electron hole transfer compound kinds or two sorts or more, or may carry out the laminating of the hole-injection transportation layer which consists of a compound of another kind to said layer. On the other hand, the electronic injection layer (electron injection transportation layer) in the EL element of the configuration of the above (3) consists of an electron transport compound, and it has the function to transmit the electron poured in from cathode to a luminous layer. There is especially no limit about such an electron transport compound, and the thing of arbitration can be conventionally chosen and used out of a well-known compound. As a desirable example of this electron transport compound, it is [0026].

[Formula 9]



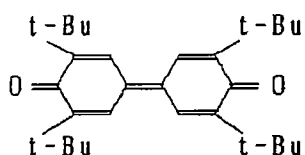
[0027] which nitration full -- me -- non -- a derivative and [0028]

[Formula 10]



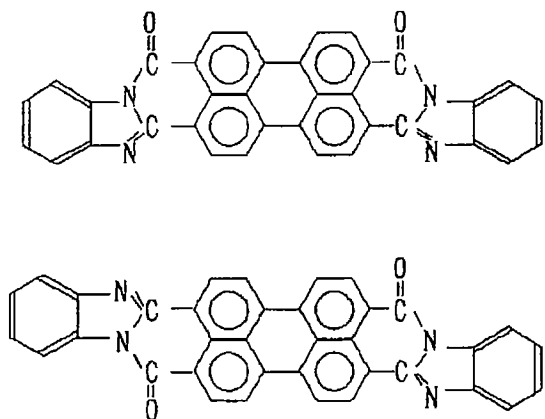
[0029] Which thiopyran dioxide derivative, [0030]

[Formula 11]



[0031] which diphenyl quinone derivative ["a polymer pre-print (Polymer Preprints) and Japan" -- given in 37th volume, No. 3, 681st page (1988), etc. thing], or [0032]

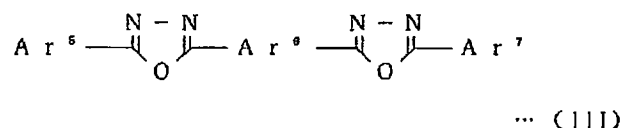
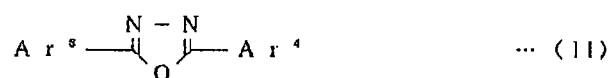
[Formula 12]



[0033] Which compound ["journal OBU applied physics (J. Apply.Phys.)" Thing]

given in the 27th volume, the 269th page (1988), etc., An anthra quinodimethan derivative (thing given in JP,57-149259,A, a 58-55450 official report, a 61-225151 official report, a 61-233750 official report, a 63-104061 official report, etc.), A deflection ORENIRIDEN methane derivative (thing given in JP,60-69657,A, a 61-143764 official report, a 61-148159 official report, etc.), an anthrone derivative (thing given in JP,61-225151,A, a 61-233750 official report, etc.) -- again -- the following general formula (II) or (III) [0034]

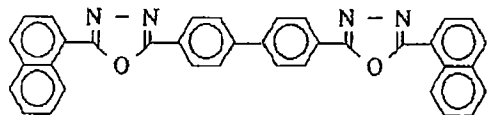
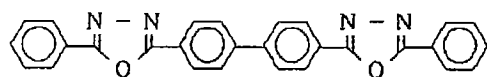
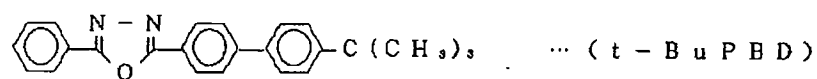
[Formula 13]



[0035] (-- among a formula, Ar3 -Ar5 and Ar7 show independently the aryl group which is not permuted [a permutation or], respectively, and Ar6 shows the arylene radical which is not permuted [a permutation or].) -- the electron transport compound expressed is mentioned. Here, as an aryl group, a phenyl group, a naphthyl group, a biphenyl radical, an anthranil, a peri RENIRU radical, a pyrenyl radical, etc. are mentioned, and a phenylene group, a naphthylene radical, a biphenylene radical, an anthracenylene group, a peri RENIREN radical, a pyrenylene radical, etc. are mentioned as an arylene radical. Moreover, as a

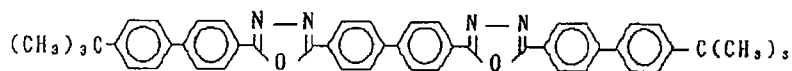
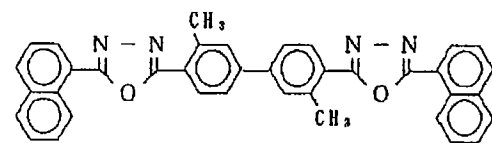
substituent, the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, or a cyano group is mentioned. This general formula (II) or (III) compound expressed has the desirable thing of a thin film plasticity. As a general formula (II) or (III) an example of a compound expressed, it is [0036].

[Formula 14]



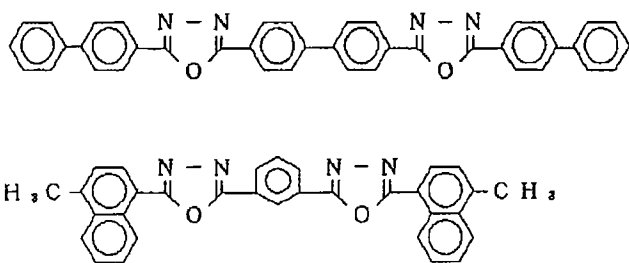
[0037]

[Formula 15]



[0038]

[Formula 16]



[0039] ** is mentioned.

[0040] "Appl.Phys.Lett." The 55th volume, the oxadiazole derivative currently indicated by the 1489th page (1989) can be mentioned. In addition, a hole-injection transportation layer and an electronic injection layer are layers which have electrical impregnation nature, transportability, or obstruction nature, and can also use inorganic materials other than the above-mentioned organic material, such as crystallinity, such as Si system, a SiC system, and a CdS system, thru/or an amorphous ingredient. Although the hole-injection transportation layer and electronic injection layer using an organic material can be formed like a luminous layer and the hole-injection transportation layer and electronic injection layer using an inorganic material can be formed by the vacuum deposition method, sputtering, etc., since it is the same as that of the time of a luminous layer even when which an organic and inorganic ingredient is used, forming with a vacuum deposition method is desirable.

[0041] Next, each component of each configuration of the example of the suitable approach of producing the EL element using the compound of this

invention is explained. If the method of producing an EL element which consists of aforementioned anode plate / luminous layer / cathode explains, after making 1 micrometer or less of thin films which consist of desired electrode material, for example, matter for anode plates, form by approaches, such as vacuum evaporation and sputtering, so that it may become the thickness of the range of 10-200nm preferably and producing an anode plate on a suitable substrate, make the thin film of the diolefin compound expressed with the general formula (I) which is luminescent material form, and a luminous layer will prepare on this first. As the approach of thin-film-izing of this luminescent material, although there are a spin coat method, the cast method, vacuum deposition, etc., for example, the point of the homogeneous film being easy to be obtained and being hard to generate a pinhole to vacuum deposition is desirable. When adopting this vacuum deposition as thin film-ization of this luminescent material, although it changes with crystal structures, meeting structures, etc. which are made into the class of organic compound used for the luminous layer to be used, and the purpose of the molecule deposition film, as for that vacuum evaporation condition, it is desirable to choose suitably whenever [boat stoving temperature] generally 50-400 degrees C, a 10^{-5} to ten to 3 Pa degree of vacuum, an evaporation rate 0.01 - 50 nm/sec, the substrate temperature of -50-+300 degrees C, 5nm of thickness, and in 5 micrometers. Next, a desired EL

element is obtained by making 1 micrometer or less of thin films which consist of matter for cathode on it form by approaches, such as vacuum evaporation and sputtering, after formation of this luminous layer, so that it may become the thickness of the range of 50-200nm preferably, and preparing cathode. In addition, in production of this EL element, it is also possible to make production sequence reverse and to produce it in order of cathode, a luminous layer, and an anode plate.

[0042] moreover, as the production approach in the case of the component which consists of the anode plate / a luminous layer / cathode which inter-electrode was made to pinch in the form where it made inter-electrode [of a pair] mix a hole-injection transportation ingredient, luminescent material, and an electron injection ingredient, and was made into the luminous layer For example, [whether the solution which forms the thin film which consists of matter for anode plates on a suitable substrate, and consists of binders, such as a hole-injection transportation ingredient, luminescent material, an electron injection ingredient, and a polyvinyl carbazole, etc. is applied, and] Or a thin film is made to form with a dip coating method from this solution, it considers as a luminous layer, and there is a thing which makes the thin film which consists of matter for cathode form on it. Vacuum deposition of the component ingredient which turns into an ingredient of a luminous layer further may be carried out, and

the thin film which consists of matter for cathode on it may be made to form on the produced luminous layer here. Or the coincidence vacuum evaporation of a hole-injection transportation ingredient, an electron injection ingredient, and the luminescent material may be carried out, it may consider as a luminous layer, and the thin film which consists of matter for cathode may be made to form on it.

[0043] Next, first, if the method of producing the EL element which consists of an anode plate / hole-injection transportation layer / luminous layer / cathode is explained, after forming an anode plate like the case of the aforementioned EL element, on it, the thin film which consists of an electron hole transfer compound will be formed with a spin coat method etc., and a hole injection layer will be formed. The conditions in this case should just apply to the conditions of thin film formation of said luminescent material correspondingly. Next, a desired EL element is obtained by preparing a luminous layer and cathode like the case of production of said EL element one by one on this hole-injection transportation layer. In addition, also in production of this EL element, it is also possible to make production sequence reverse and to produce it in order of cathode, a luminous layer, a hole-injection transportation layer, and an anode plate. Furthermore, if the method of producing the EL element which consists of an anode plate / hole-injection transportation layer / luminous layer / electronic injection layer / cathode is explained First, like the case of production of the

aforementioned EL element, after preparing an anode plate, a hole-injection transportation layer, and a luminous layer one by one, the thin film which consists of an electron transport compound is formed with a spin coat method etc. on this luminous layer. A desired EL element is obtained by forming an electronic injection layer and subsequently preparing cathode like the case of production of said EL element on this. In addition, also in production of this EL element, production sequence may be made reverse and may be produced in order of an anode plate, an electronic injection layer, a luminous layer, a hole-injection transportation layer, and an anode plate.

[0044] Thus, if + is impressed for an anode plate and it impresses about electrical-potential-difference 1-30V for cathode as a polarity of - in impressing direct current voltage to the organic EL device of obtained this invention, luminescence can observe from a translucent transparence or electrode side. Moreover, even if it impresses an electrical potential difference with a reverse polarity, a current does not flow and luminescence is not produced at all. Furthermore, in impressing alternating voltage, only when an anode plate changes + and cathode changes into the condition of -, it emits light. In addition, the wave of the alternating current to impress is arbitrary and good.

[0045]

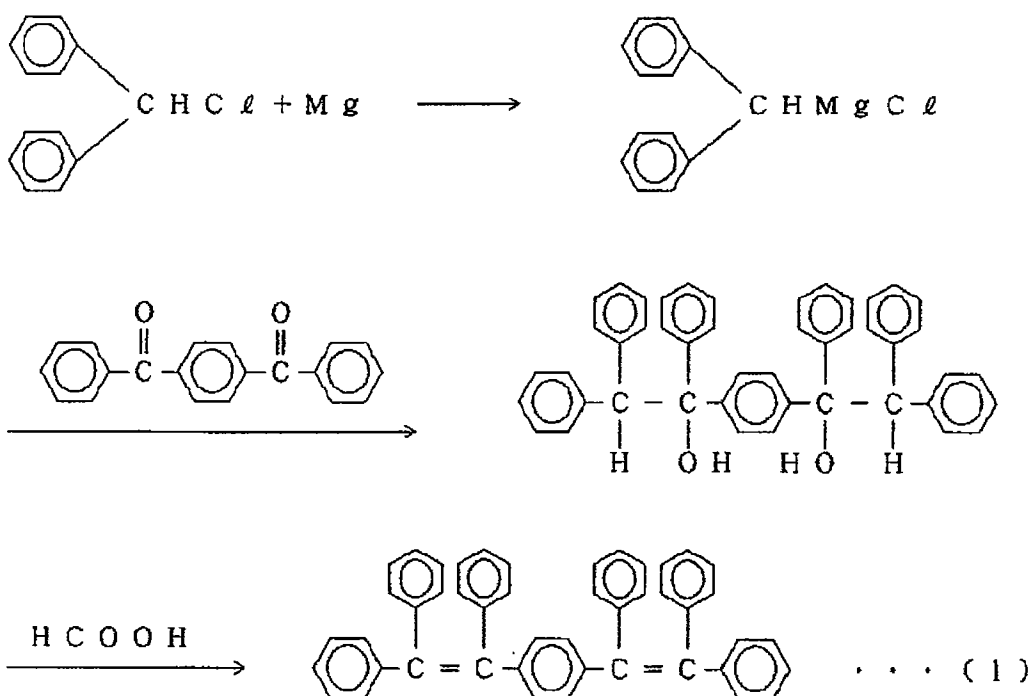
[Example] Next, a synthetic example and an example explain this invention in

more detail.

The synthetic example 1 [0046]

[Formula 17]

合成スキーム



[0047] 50ml of diphenyl chloromethane 5.0g (0.025 mols) tetrahydrofuran solutions was dropped at magnesium 1.0g (0.041 mols) over 1 hour under the argon gas ambient atmosphere at 0 degree C. At this time, the reactant became yellow suspension. After stirring as it is for 2 hours, 50ml of 1 and 4-dibenzoyl benzene 3.0g (0.01 mols) tetrahydrofuran solutions was dropped over 30 minutes at 0 degree C. Furthermore, when stirred for 4 hours, the reactant became yellowish green suspension. The obtained reactant was supplied to 50g

of ice, 50ml of methylene chlorides extracted, and when the solvent was distilled off, light yellow powder was obtained. Reflux stirring of this light yellow powder and 12ml of formic acid was carried out for 10 minutes at 130 degrees C, and after radiationnal cooling, as a result of supplying to 50g of ice, 50ml of methylene chlorides extracting and a silica gel column's refining, 1.0g yellow powder was obtained. It was $\nu_{C=C} = 1598$ and 1500cm^{-1} as a result of IR measurement of the obtained yellow powder.

It was $m/Z=586$ (M^+) as a result of mass analysis.

Furthermore, it is C:94.23% (94.16%) as $C_{46}H_{34}$ as a result of elemental analysis (() is calculated value).

H: 5.77%(5.84%)

It came out. Moreover, it is $\delta = 7.0-7.5$ ppm (m, 34H, H of a ring) as a result of proton nuclear-magnetic-resonance (1 H-NMR criteria: tetramethylsilane (TMS) and solvent: $CDCl_3$) measurement.

It came out. As mentioned above, it was checked that the target diolefin compound (1) is compounded.

[0048] The diolefin compound (14) was obtained like the synthetic example 1 except having replaced synthetic example 2 diphenyl chloromethane with the benzyl star's picture. The physical-properties value of the obtained compound is shown in the 1st table.

[0049] The diolefin compound (12) was obtained like the synthetic example 1 except having replaced synthetic example 3 diphenyl chloromethane with alpha-BUROMO ethylbenzene. The physical-properties value of the obtained compound is shown in the 1st table.

[0050] The diolefin compound (9) was obtained like the synthetic example 1 except having replaced the synthetic example 41 and 4-dibenzoyl benzene with the 4 and 4'-dibenzoyl biphenyl. The physical-properties value of the obtained compound is shown in the 1st table.

[0051]

[Table 1]

第 1 表			
合成例	¹ H-NMR (基準: TMS, 溶媒: CDCl ₃)	質量分析 (m/z)	元素分析 (%) (()内は計算値)
2	δ = 6.8 ~ 7.5 ppm, m, 2 H (芳香環の H)	434	C ₃₄ H ₂₆ C: 94.02 (93.97) H: 5.98 (6.03)
3	δ = 6.8 ~ 7.4 ppm, m, 2 H (芳香環の H) δ = 2.6 ppm, s, 6 H (CH ₃ の H)	462	C ₃₆ H ₃₀ C: 93.33 (93.41) H: 6.67 (6.59)
4	δ = 6.8 ~ 7.5 ppm, m, 3 H (芳香環の H)	662	C ₅₈ H ₃₈ C: 94.31 (94.22) H: 5.69 (5.78)

[0052] The glass substrate (25mmx75mmx1.1mm, Hoya make) of 100nm of example 1 thickness was used as the transparence support substrate. This transparence support substrate was cleaned ultrasonically for 5 minutes by isopropyl alcohol, and it was immersed in isopropyl alcohol, and washed, and

UV ion scrubber (SAMUKO international company make) washed further. Dry this transperence support substrate with desiccation nitrogen gas, and it fixes to the substrate electrode holder of commercial vacuum evaporationo equipment (product made from Japanese Vacuum technology). N, N'-bis(3-methylphenyl)-N, N'-diphenyl-[1 and 1'-biphenyl]-4, and 200mg (TPD) of 4'-diamines are put into the resistance heating boat made from molybdenum. Moreover, 1 expressed with another boat made from molybdenum with the compound (1) obtained in the synthetic example 1 and 200mg of 4-bis(1, 2-diphenyl vinyl) benzene are put in. still more nearly another boat made from molybdenum -- said 2-(4-biphenylyl)-5-(4-t-buthylphenyl)- 200mg (t-BuPBD) of 1, 3, and 4-oxadiazole was put in, and it attached in the vacuum evaporation system. Subsequently, after decompressing a vacuum layer up to 4×10^{-6} Pa, it energized on said heating boat containing TPD, heated to 250 degrees C, it vapor-deposited on the transperence support substrate with the evaporation rate of 0.1-0.3nm/second, and the hole-injection transportation layer of 50nm of thickness was prepared. And it energized on said heating boat containing 1 and 4-bis(1, 2-diphenyl vinyl) benzene, heated to 220 degrees C, it vapor-deposited on the above-mentioned hole-injection transportation layer with the evaporation rate of 0.1-0.3nm/second, and the luminous layer of 60nm of thickness was prepared. Furthermore, it energized on said heating boat containing t-BuPBD, heated to 160 degrees C, it

vapor-deposited on the luminous layer with the evaporation rate of 0.1-0.4nm/second, and the electronic injection layer of 20nm of thickness was formed. In addition, the substrate temperature at the time of vacuum evaporation was a room temperature. Next, after opening the vacuum tube, having installed the mask made from stainless steel on this electronic injection layer, having put magnesium 3g into the resistance heating boat made from molybdenum, and putting the indium into another resistance heating filament on the other hand and decompressing a vacuum tube up to 2×10^{-6} Pa again, it energized on the boat containing magnesium and magnesium was vapor-deposited with the evaporation rate of 4-7nm/second. The indium was heated to coincidence, and it vapor-deposited with the evaporation rate of 0.2-0.3nm/second, and considered as the counterelectrode which consists of mixture of said magnesium and indium, and the target EL element was produced. When the ITO electrode of this component was made into the anode plate and direct-current 10V were impressed by using as cathode the counterelectrode which consists of mixture of magnesium and an indium, current density is 2 35mA/cm. Blue which a current flows and is the peak wavelength of 488nm Luminescence of Green was obtained. the brightness at this time -- 250 cd/m² it was .

[0053] The component was produced like the example 1 except having replaced

the compound used in the two to example 4 example 1 with the compound obtained in the synthetic examples 2-4. The obtained result is shown in the 2nd table.

[0054]

[Table 2]

第 2 表								
実施例	EL 素子構成	化合物	膜厚 (nm)	印加電圧 (V)	輝度 (mA/cm ²)	輝度 (cd/m ²)	発光 波長 (nm)	発光色
2	正孔注入輸送層	TPD	50	10	45	300	486	Greenish Blue
	発光層	化合物 (14)	60					
	電子注入層	t-BuPBD	20					
	陰極	Mg:In	130					
3	正孔注入輸送層	TPD	50	10	25	200	480	Blue
	発光層	化合物 (12)	60					
	電子注入層	t-BuPBD	20					
	陰極	Mg:In	130					
4	正孔注入輸送層	TPD	50	10	30	450	478	Blue
	発光層	化合物 (9)	60					
	電子注入層	t-BuPBD	20					
	陰極	Mg:In	130					

[0055] Moreover, in order to check the filmy difference with the organic EL device obtained in the examples 1-4, and the organic EL device which used the non-permuted tetra-phenyl butadiene compound (1, 1, 4, and 4-tetra-phenyl-1,3-butadiene) as a luminous layer as an example of a comparison, optical microscope observation was performed. The organic EL device used here was produced like the example 1. Consequently, the organic EL device of examples 1-4 had slow crystallization, and crystallization was not

observed for one month. On the other hand, the tetra-phenyl butadiene compound used as a luminous layer in the example of a comparison was crystallized in several component-sized back days. Therefore, it was checked that the filminess of this invention is excellent.

[0056]

[Effect of the Invention] Like the above, the EL element which used the diolefin compound of this invention was excellent in filminess, and enabled high brightness luminescence. Therefore, this invention can be used in various industrial fields as an organic EL device.